

Docket No. 215473US0

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Klaus SCHULTES, et al.

SERIAL NO: New Application

FILED: Herewith

FOR: MOULDING COMPOSITIONS WITH DIFFUSING PROPERTIES AND MOULDINGS OBTAINABLE FROM THESE

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
WASHINGTON, D.C. 20231



SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

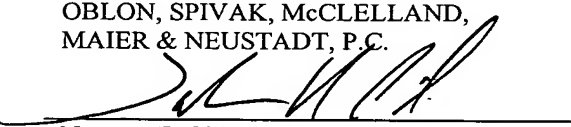
<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Germany	100 65 492.4	December 28, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)
- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

  
Norman F. Oblon

Registration No. 24,618

John K. Pike, Ph.D.

Registration No. 41,253



22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 10/98)

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 100 65 492.4

**Anmeldetag:** 28. Dezember 2000

**Anmelder/Inhaber:** Röhm GmbH & Co KG,  
Darmstadt/DE

**Erstanmelder:** RÖHM GMBH Chemische Fabrik,  
Darmstadt/DE

**Bezeichnung:** Diffus ausgestattete Formmassen und  
hieraus erhältliche Formkörper

**IPC:** C 08 J, C 08 K, C 08 L

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 28. Juni 2001  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Walner

r 522

27. Dezember 2000

mai/js

tb000055.rtf

RÖHM GMBH  
Chemische Fabrik  
Kirschenallee

D-64293 Darmstadt

---

Diffus ausgestattete Formmassen und hieraus erhältliche Formkörper

---

## Diffus ausgestattete Formmassen und hieraus erhältliche Formkörper

Die vorliegende Erfindung betrifft diffus ausgestattete  
5 Formmassen aufweisend Matrixpolymere und  
Perlpolymerisate mit einer mittleren Teilchengröße im  
Bereich von 5 bis 40  $\mu\text{m}$ , die einen vom Matrixpolymer  
unterschiedlichen Brechungsindex  $n_2$  bei 20°C aufweisen,  
wobei die Perlpolymerisate nach einem Verfahren  
10 erhältlich sind, bei dem man eine polymerisierbare  
Zusammensetzung, die mindestens 50 Gew.-%  
(Meth)acrylate aufweist, in wäßriger Phase dispergiert  
und polymerisiert. Des weiteren sind lichtstreuende  
Formkörper Gegenstand der vorliegenden Erfindung, die  
15 durch thermoplastisches Formen der erfindungsgemäßen  
Formmassen erhältlich sind.

Für verschiedene Zwecke, beispielsweise zur Herstellung  
von Abdeckungen für Beleuchtungskörpern, werden  
Standardformmassen lichtstreuend oder diffus  
20 ausgestattet.

Hierzu werden insbesondere klassische Trübungsmittel,  
wie z.B.  $\text{BaSO}_4$  oder  $\text{TiO}_2$ , verwendet, die jedoch eine  
geringe Lichtausbeute zeigen, da ein großer Teil des  
Lichtes rückwärts gestreut wird.

25 Neuerdings werden jedoch auch sogenannten Streuperlen,  
welche vernetzt sind und einen anderen Brechungsindex  
als die Matrix besitzen, eingesetzt. Zur Zeit werden in  
diesen Formmassen Streuteilchen auf PMMA-Basis mit  
30 einer Teilchengröße von weit über 40  $\mu\text{m}$  verwendet. Der  
Vorteil dieser Streuteilchen liegt in der hohen  
Vorwärtsstreuung der Formkörper nach der Einarbeitung

der Streuteilchen in die Formmassen. Diese bevorzugte Vorwärtsstreuung kann durch Messung der Transmission in der Kombination mit dem Energiehalbwertswinkel von Formkörpern, die Streuperlen enthalten, bestimmt werden.

Je kleiner die Teilchengröße der Streuperlen ist, desto höher ist der Streueffekt. Durch Verwendung kleinerer Perlen kann daher deren Menge verringert werden. Dies spart Kosten und schont die Ressourcen. Des weiteren zeigen die mit den kleineren Perlpolymerisaten ausgestatteten Formmassen hervorragende mechanische Eigenschaften, da die verminderte Menge an Streuperlen diese Eigenschaften weniger stark beeinflusst. Werden Streuperlen mit einem Durchmesser kleiner als 5  $\mu\text{m}$  eingesetzt, nimmt der Gelbeindruck der so hergestellten Formmassen deutlich zu.

Durch einen speziellen Versuch, bei dem eine Lichtstreuteilchen aufweisende PMMA-Gußplatte von der Seite ausgeleuchtet wird, zeigt sich, daß optimale Teilchen eine Größe im Bereich von 5-20  $\mu\text{m}$  haben, wobei die Größenverteilung möglichst eng sein sollte.

Polymerteilchen in der Größenordnung zwischen 1 - 10  $\mu\text{m}$  lassen sich über eine Fällungspolymerisation, bei der große Mengen an organischen Lösungsmitteln eingesetzt werden, gut realisieren. Allerdings sind die verwendeten Lösungsmittel sicherheitstechnisch und abfalltechnisch nicht einfach zu handhaben. Auch die Aufarbeitung bereitet Probleme. Daher sind so erhaltene Perlen teuer und werden in den oben dargelegten Anwendungsgebieten aus Kostengründen nicht eingesetzt.

Kostengünstiger lassen sich Polymerperlen durch konventionelle Suspensionspolymerisation gewinnen. Allerdings sind die so erhaltenen Teilchen im allgemeinen größer als 40µm und zeigen eine breite  
5 Verteilung.

Beispielsweise ist aus EP-A-0 443 609 ein Suspensionsverfahren zur Herstellung von Perlpolymerisaten bekannt, bei dem man zwei getrennt  
10 zugeführte Phasen (Monomere und kontinuierliche Phase) in einer Mischzelle mit hoher Scherenergie vereinigt und danach die Monomere in einem üblichen Reaktionskessel polymerisiert. Es werden verschiedene Hilfsstoffe zur Stabilisierung der Dispersion genannt.  
15 Hierzu gehören unter anderem anorganische Stoffe, wie Calciumphosphat, und organische Verbindungen, wie Cellulosederivate oder Polyvinylalkohol. Die Verwendung von Aluminiumverbindungen wird in EP-A-0 443 609 nicht beschrieben.

20 In den Beispielen wird dargelegt, daß Teilchengrößen im Bereich von 5 bis 10 µm erhalten werden. Allerdings bestand die Monomerenmischung zu 80 Gew.-% aus Styrol. Wiederholt man diese Versuche unter Verwendung von  
25 Mischungen, die mehr als 50 Gew.-% acrylische Monomere aufweisen, so tritt eine starke Vergrößerung der Teilchen auf. Bei Verwendung von bekannten organischen Stabilisatoren werden zwar kleine Teilchen erhalten. Verarbeitet man diese Teilchen in Formmassen tritt eine  
30 starke Gelbfärbung auf, die zu einer vermehrten Rückstrahlung, also zu einer geringeren Lichtausbeute führt.

In Anbetracht des hierin angegebenen und diskutierten  
35 Standes der Technik war es mithin Aufgabe der

vorliegenden Erfindung diffus ausgestattete Formmassen anzugeben, die kostengünstig und umweltfreundlich herstellbar sind.

5 Insbesondere sollten die Perlpolymerisate, die in die Formmassen eingearbeitet werden, durch ein Verfahren herstellbar sein, bei dem man Teilchen mit einer mittleren Größe im Bereich von 5 bis 40  $\mu\text{m}$  erhält, ohne daß man ein organisches Lösungsmittel in großen Mengen verwendet, das nach der Polymerisation abgetrennt  
10 werden muß.

Eine weitere Aufgabe der Erfindung bestand darin, diffus ausgestattete, mit Perlpolymerisat abgemischte Formmassen anzugeben, wobei die Perlpolymerisate durch Verfahren erhältlich sind, die mit kommerziell  
15 erhältlichen Anlagen durchgeführt werden können.

Des weiteren lag der Erfindung die Aufgabe zugrunde, zur Herstellung der in den Formmassen einzusetzenden Perlpolymerisate ein Verfahren bereitzustellen, das  
20 ohne größeres Sicherheitsrisiko verwirklicht werden kann. Insbesondere die Freisetzung von umweltschädlichen Stoffen oder deren Handhabung sollte vermieden werden.

25 Ein weiteres Ziel der vorliegenden Erfindung bestand darin, ein Verfahren zur Herstellung der in den Formmassen zu verwendenden Perlpolymerisate anzugeben, bei dem die erhaltene Suspension durch Filtration, insbesondere unter Druck bzw. Vakuum, aufgearbeitet  
30 werden kann.

Des weiteren sollten diffuse Formkörper mit hervorragenden Eigenschaften zur Verfügung gestellt werden, die kostengünstig herstellbar sind.

Eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand darin Formkörper zur Verfügung zu stellen, die eine hohe Transmission, eine geringe Gelbfärbung und einen hohen Energiehalbwertswinkel aufweisen.

Ein weiteres zu lösendes Problem lag darin begründet, Formkörper mit hervorragenden mechanischen Eigenschaften zu schaffen. Insbesondere sollten die Formkörper eine hohe Schlagfestigkeit und Wetterfestigkeit besitzen. Insbesondere sollten die lichtstreuenden Formkörper durch Lichteinwirkung über eine längere Zeit keine Verfärbung zeigen, die insbesondere bei einem Abbau der Perlpolymerisate auftreten können. Darüber hinaus sollten die Formkörper eine hohe Kratzfestigkeit zeigen.

Gelöst werden diese Aufgaben sowie weitere, die zwar nicht wörtlich genannt werden, sich aber aus den hierin diskutierten Zusammenhängen wie selbstverständlich ableiten lassen oder sich aus diesen zwangsläufig ergeben, durch die in Anspruch 1 beschriebenen Maßnahmen. Zweckmäßige Abwandlungen des erfindungsgemäßen Verfahrens werden in den auf Anspruch 1 rückbezogenen Unteransprüchen unter Schutz gestellt.

Hinsichtlich der Formkörper bieten die Ansprüche 12 bis 16 ein hervorragendes Resultat in bezug auf die zugrundeliegenden Probleme.

Dadurch, daß man eine polymerisierbare Zusammensetzung, die mindestens 50 Gew.-% (Meth)acrylate aufweist, in wäßriger Phase dispergiert und polymerisiert, wobei man die mit einer Aluminiumverbindung stabilisierte Dispersion bei einer Schergeschwindigkeit  $\geq 10^3 \text{ s}^{-1}$



herstellt, gelingt es hochwertige Perlpolymerisate mit einer mittleren Teilchengröße im Bereich von 5 bis 40  $\mu\text{m}$ , die einen vom Matrixpolymer unterschiedlichen Brechungsindex  $n_D$  bei 20°C aufweisen, zur Verfügung zu stellen, mit denen Matrixpolymere kostengünstig diffus ausgestattet werden können.

Durch die erfindungsgemäßen Maßnahmen werden u.a. insbesondere folgende Vorteile erzielt:

- 10      ➤ Die erfindungsgemäßen Formmassen können kostengünstig und umweltfreundlich hergestellt werden, da die Perlpolymere, ohne große Mengen an organischen Lösungsmitteln erhalten werden können. Hierdurch kann insbesondere die Freisetzung von umweltschädlichen Stoffen oder deren Handhabung  
15      vermieden werden.
- 20      ➤ Das Polymerisationsverfahren zur Herstellung der in den Formmassen einzusetzenden Perlpolymerisate kann mit kommerziell erhältlichen Anlagen durchgeführt werden.
- 25      ➤ Die zur diffusen Ausstattung der Formmassen verwendeten Perlpolymerisate können erfindungsgemäß ohne größeres Sicherheitsrisiko erhalten werden, da die Verwendung von organischen Lösungsmitteln höchstens in minimalen Mengen  
30      erfolgt.
- 30      ➤ Das Verfahren, durch das die Perlpolymerisate erzeugt werden, erlaubt eine Filtration, die ein einfaches Abtrennen von Verunreinigungen ermöglicht. Hierdurch können die Formmassen in hoher Reinheit kostengünstig erhalten werden.

➤ Lichtstreuende Formkörper, die durch formen  
erfindungsgemäßer Formmassen erhältlich sind,  
zeigen einen geringen Gelbwert, eine hohe  
Transmission und einen großen  
5 Energiehalbwertswinkel. Diese Eigenschaften werden  
auch durch starke Lichteinwirkung über längere  
Zeit nicht oder nur geringfügig beeinträchtigt.

➤ Des weiteren weisen die Formkörper der  
vorliegenden Erfindung hervorragende mechanische  
und optische Eigenschaften auf. Insbesondere  
10 besitzen die Formkörper eine hohe  
Schlagfestigkeit, eine hohe Kratzfestigkeit, eine  
hohe Lichtbeständigkeit und eine hervorragende  
Wetterfestigkeit.

15

Die im Rahmen der vorliegenden Erfindung einzusetzenden  
Perlpolymerisate weisen eine mittlere Teilchengröße im  
Bereich von 5 bis 40  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise von 5 bis 20  $\mu\text{m}$   
auf. Die Teilchengröße bezieht sich auf den  
20 Partikeldurchmesser. Dieser Wert kann beispielsweise  
durch Laserextinktionsverfahren bestimmt werden. Hierzu  
kann ein CIS-Teilchen-Analysator der Fa. L.O.T. GmbH  
verwendet werden, wobei die Meßmethode zur Bestimmung  
der Teilchengröße im Benutzerhandbuch enthalten ist.  
25 Diese Methode ist bevorzugt. Darüber hinaus kann die  
Teilchengröße durch Messen und Auszählen der Teilchen  
auf entsprechenden Rasterelektronenmikroskop-Aufnahmen  
ermittelt werden.

Besondere Ausführungsformen der erfindungsgemäß zu  
30 verwendenden Perlpolymerisate zeigen eine enge  
Größenverteilung. Besonders bevorzugt ist die

Standardabweichung vom gemittelten Partikeldurchmesser  
 $\leq 20\mu\text{m}$  und ganz besonders bevorzugt  $\leq 10\mu\text{m}$ .

In besonderen Ausgestaltungen der erfindungsgemäßen  
 Formmassen werden sphärische oder kugelförmige  
 5 Perlpolymerisate eingesetzt, die nicht oder nur in  
 geringem Maß koagulieren, aggregieren oder  
 zusammenlagern.

Die zu polymerisierende Zusammensetzung weist  
 mindestens 50 Gew.-% (Meth)acrylat, bezogen auf das  
 10 Gewicht der Monomeren, auf. Vorzugsweise beträgt der  
 Anteil der (Meth)acrylate mindestens 60 Gew.-% und  
 besonders bevorzugt mindestens 80 Gew.-%, bezogen auf  
 das Gewicht der Monomeren. Der Ausdruck  
 polymerisierbare Zusammensetzung bezeichnet ethylenisch  
 15 ungesättigte Monomere, die einzeln oder als Mischung  
 eingesetzt werden können.

Der Ausdruck (Meth)acrylate umfaßt Methacrylate und  
 Acrylate sowie Mischungen aus beiden. Diese Monomere  
 sind weithin bekannt.

20 Zu diesen gehören unter anderem  
 (Meth)acrylate, die sich von gesättigten Alkoholen  
 ableiten, wie beispielsweise Methyl(meth)acrylat,  
 Ethyl(meth)acrylat, Propyl(meth)acrylat,  
 n-Butyl(meth)acrylat, tert.-Butyl(meth)acrylat,  
 25 Pentyl(meth)acrylat und 2-Ethylhexyl(meth)acrylat;  
 (Meth)acrylate, die sich von ungesättigten Alkoholen  
 ableiten, wie z. B. Oleyl(meth)acrylat,  
 2-Propinyl(meth)acrylat, Allyl(meth)acrylat,  
 Vinyl(meth)acrylat;  
 30 Aryl(meth)acrylate, wie Benzyl(meth)acrylat oder  
 Phenyl(meth)acrylat, wobei die Arylreste jeweils  
 unsubstituiert oder bis zu vierfach substituiert sein

können;

Cycloalkyl(meth)acrylate, wie

3-Vinylcyclohexyl(meth)acrylat, Bornyl(meth)acrylat;

Hydroxylalkyl(meth)acrylate, wie

5 3-Hydroxypropyl(meth)acrylat,

3,4-Dihydroxybutyl(meth)acrylat,

2-Hydroxyethyl(meth)acrylat,

2-Hydroxypropyl(meth)acrylat;

Glycoldi(meth)acrylate, wie 1,4-Butandiol(meth)acrylat,

10 (Meth)acrylate von Etheralkoholen, wie

Tetrahydrofurfuryl(meth)acrylat,

Vinyloxyethoxyethyl(meth)acrylat;

Amide und Nitrile der (Meth)acrylsäure, wie

N-(3-Dimethylaminopropyl)(meth)acrylamid,

15 N-(Diethylphosphono)(meth)acrylamid,

1-Methacryloylamido-2-methyl-2-propanol;

schwefelhaltige Methacrylate, wie

Ethylsulfinylethyl(meth)acrylat,

4-Thiocyanatobutyl(meth)acrylat,

20 Ethylsulfonylethyl(meth)acrylat,

Thiocyanatomethyl(meth)acrylat,

Methylsulfinylmethyl(meth)acrylat,

Bis((meth)acryloyloxyethyl)sulfid;

mehrwertige (Meth)acrylate, wie

25 Trimethyloxypropantri(meth)acrylat.

Neben den zuvor dargelegten (Meth)acrylaten können die zu polymerisierenden Zusammensetzungen auch weitere

ungesättigte Monomere aufweisen, die mit den zuvor

genannten (Meth)acrylaten copolymerisierbar sind. Im

30 allgemeinen werden diese Verbindungen in einer Menge

von 0 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 0 bis 40 Gew.-% und

besonders bevorzugt 0 bis 20 Gew.-%, bezogen auf das

Gewicht der Monomeren, eingesetzt, wobei die Comonomere

einzelnen oder als Mischung verwendet werden können.

Hierzu gehören unter anderem 1-Alkene, wie Hexen-1, Hepten-1; verzweigte Alkene, wie beispielsweise Vinylcyclohexan, 3,3-Dimethyl-1-propen, 3-Methyl-1-diisobutylen, 4-Methylpenten-1;

5 Vinylester, wie Vinylacetat;

Styrol, substituierte Styrole mit einem Alkylsubstituenten in der Seitenkette, wie z. B.

$\alpha$ -Methylstyrol und  $\alpha$ -Ethylstyrol, substituierte Styrole mit einem Alkylsubstituenten am Ring, wie Vinyltoluol

10 und p-Methylstyrol, halogenierte Styrole, wie beispielsweise Monochlorstyrole, Dichlorstyrole, Tribromstyrole und Tetrabromstyrole;

Heterocyclische Vinylverbindungen, wie 2-Vinylpyridin, 3-Vinylpyridin, 2-Methyl-5-vinylpyridin, 3-Ethyl-

15 4-vinylpyridin, 2,3-Dimethyl-5-vinylpyridin, Vinylpyrimidin, Vinylpiperidin, 9-Vinylcarbazol, 3-Vinylcarbazol, 4-Vinylcarbazol, 1-Vinylimidazol, 2-Methyl-1-vinylimidazol, N-Vinylpyrrolidon,

2-Vinylpyrrolidon, N-Vinylpyrrolidin,

20 3-Vinylpyrrolidin, N-Vinylcaprolactam,

N-Vinylbutyrolactam, Vinyloxolan, Vinylfuran,

Vinylthiophen, Vinylthiolan, Vinylthiazole und

hydrierte Vinylthiazole, Vinyloxazole und hydrierte Vinyloxazole;

25 Vinyl- und Isoprenylether;

Maleinsäurederivate, wie beispielsweise

Maleinsäureanhydrid, Methylmaleinsäureanhydrid,

Maleinimid, Methylmaleinimid; und

Diene, wie beispielsweise Divinylbenzol.

30 Die Polymerisation wird im allgemeinen mit bekannten Radikalinitiatoren gestartet. Zu den bevorzugten Initiatoren gehören unter anderem die in der Fachwelt weithin bekannten Azoinitiatoren, wie AIBN und 1,1-

- Azobiscyclohexancarbonitril, sowie Peroxyverbindungen, wie Methylethylketonperoxid, Acetylacetonperoxid, Dilaurylperoxyd, tert.-Butylper-2-ethylhexanoat, Ketonperoxid, Methylisobutylketonperoxid,
- 5 Cyclohexanonperoxid, Dibenzoylperoxid, tert.-Butylperoxybenzoat, tert.-Butylperoxyisopropylcarbonat, 2,5-Bis(2-ethylhexanoyl-peroxy)-2,5-dimethylhexan, tert.-Butylperoxy-2-ethylhexanoat, tert.-Butylperoxy-3,5,5-trimethylhexanoat, Dicumylperoxid,
- 10 1,1-Bis(tert.-butylperoxy)cyclohexan, 1,1-Bis(tert.-butylperoxy)3,3,5-trimethylcyclohexan, Cumylhydroperoxid, tert.-Butylhydroperoxid, Bis(4-tert.-butylcyclohexyl)peroxydicarbonat, Mischungen von zwei oder mehr der vorgenannten
- 15 Verbindungen miteinander sowie Mischungen der vorgenannten Verbindungen mit nicht genannten Verbindungen, die ebenfalls Radikale bilden können.

- Diese Verbindungen werden häufig in einer Menge von 0,1 bis 10 Gew.-%, vorzugsweise von 0,5 bis 3 Gew.-%,
- 20 bezogen auf das Gesamtgewicht der Monomeren, eingesetzt.

- Das Verhältnis Wasser zu Monomer liegt üblicherweise im Bereich von 0,4:1 bis 20:1, bevorzugt von 2:1 bis 8:1, bezogen auf das Gewicht der Komponenten.
- 25 Zur Stabilisierung der Dispersion ist die Verwendung von Aluminiumverbindungen, die in Wasser schwer löslich sind, notwendig. Hierzu gehören insbesondere Aluminiumoxid  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und Aluminiumhydroxid  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , wobei  $\text{Al}(\text{OH})_3$  bevorzugt ist. Von besonderem Interesse ist
- 30 Aluminiumhydroxid, das durch Fällung hergestellt wird, wobei diese Fällung möglichst kurz vor Bildung der Dispersion erfolgen sollte. In besonderen Ausführungsformen des Verfahrens erfolgt die Fällung

innerhalb von 2 Stunden, vorzugsweise innerhalb von 1 Stunde und ganz besonders bevorzugt innerhalb von 30 Minuten vor Bildung der Dispersion.

Beispielsweise kann  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$  in Wasser gelöst werden.

5 Diese Lösung kann anschließend mit einer Natriumcarbonat-Lösung versetzt werden bis der pH-Wert im Bereich von 5 bis 5,5 liegt. Durch diese Vorgehensweise wird eine kolloidale Verteilung der Aluminiumverbindung im Wasser erhalten, die besonders  
10 bevorzugt ist.

Die Aluminiumverbindung wird vorzugsweise in einer Menge von 0,5 bis 200 Gew.-%, besonders bevorzugt 3 bis 100 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt 4 bis 20 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der  
15 verwendeten Monomere, eingesetzt. Bei Einsatz geringerer Mengen besteht die Gefahr, daß nur eine instabile Dispersion erhalten wird und eine Phasentrennung, zumindest aber die Bildung von größeren Aggregaten eintritt. Werden größere Mengen verwendet,  
20 so besteht die Gefahr, daß eine einheitliche Dispersion nicht erzielt werden kann.

Von besonderem Interesse sind auch Verfahren, in denen neben der Aluminiumverbindung weitere Hilfsmittel zur Stabilisierung eingesetzt werden. Hierzu gehören  
25 insbesondere oberflächenaktive Stoffe, wie beispielsweise anionische, kationische und neutrale Emulgatoren.

Anionische Emulgatoren sind z.B. Alkalimetallsalze von höheren Fettsäuren mit 8 bis 30 Kohlenstoffatomen, wie  
30 Palmitin-, Stearin- und Ölsäure, Alkalimetallsalze von Sulfonsäuren mit beispielsweise 8 bis 30 Kohlenstoffatomen, insbesondere Natriumsalze von Alkyl- oder Arylalkylsulfonsäuren, Alkalimetallsalze von

Halbestern der Phthalsäure, und Alkalimetallsalze von Harzsäuren, wie Abitinsäure.

Kationische Emulgatoren sind unter anderem Salze langkettiger, insbesondere ungesättigter Amine mit 10  
5 bis 20 Kohlenstoffatomen, oder quaternäre Ammoniumverbindungen mit längerkettigen Olefin- oder Paraffinresten.

Neutrale Emulgatoren sind z.B. ethoxylierte Fettalkohole, ethoxylierte Fettsäuren und ethoxylierte  
10 Phenole und Fettsäureester von mehrwertigen Alkoholen wie Pentaerythrit oder Sorbit.

Die zuvor genannten Emulgatoren werden vorzugsweise im Bereich von 0 bis 5 Gew.-%, besonders bevorzugt von 0,3 bis 3 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der  
15 Aluminiumverbindung, eingesetzt.

Darüber hinaus können der Mischung vor, während oder nach Bildung der Dispersion die üblichen Zusatzstoffe und Hilfsmittel beigelegt werden. Hierzu gehören insbesondere Stoffe, die den Partikeln bestimmte  
20 Eigenschaften verleihen, wie Polymere, Farbstoffe und Pigmente, die gegebenenfalls ferromagnetische Eigenschaften aufweisen. Des weiteren können Komplexbildner, wie EDTA oder Trilon A, und Verbindungen, welche die Bildung von Kesselbelag  
25 verhindern, wie Polyethylenglykol, eingesetzt werden.

Um die Perlpolymerisate zu herzustellen, erfolgt das Dispergieren bei einer Schergeschwindigkeit  $\geq 10^3 \text{ s}^{-1}$ . Vorzugsweise liegt die Schergeschwindigkeit im Bereich von  $10^4 \text{ s}^{-1}$  bis  $10^5 \text{ s}^{-1}$ . Bei Schergeschwindigkeiten  $< 10^3 \text{ s}^{-1}$  wird die Teilchengröße des entstehenden  
30 Perlpolymerisats größer als  $40 \mu\text{m}$ . Die Schergeschwindigkeit kann als Wert definiert werden,



den man erhält, indem man den absoluten Wert der Geschwindigkeitsdifferenz von zwei Ebenen durch die Entfernung zwischen den zwei Ebenen dividiert, wobei sich die zu dispergierende Mischung im Raum zwischen den beiden Ebenen, die einen geringen Abstand von bis zu 6 mm aufweisen, befindet.

Die Herstellung der Dispersion kann mit jedem hierfür geeigneten Verfahren erfolgen. Im allgemeinen werden hierfür Dispergatoren eingesetzt, die dem Fachmann bekannt sind. Hierzu gehören u.a. Dispermat, Fa. VMA-Getzmann, Reichshof; Ultra-Turrax, Fa. Janke und Kunkel, Staufen und Druckhomogenisator, Fa. Gaulin, Lübeck. Des weiteren sind Geräte mit einem Rotor-Stator-System bekannt, etwa Dispax, Fa. Janke und Kunkel, Staufen; Cavitron- Homogenisatoren, Fa. V. Hagen & Funke, Sprochhövel; Homogenisatoren der Fa. Kotthoff, Essen und Homogenisatoren der Fa. Doe Oliver, Grevenbroich. Üblicherweise werden diese Geräte bei Drehzahlen von 1000 bis 25000  $\text{min}^{-1}$ , bevorzugt 2000 bis 25000  $\text{min}^{-1}$  betrieben. Des weiteren können die zur Bildung der Dispersion erforderlichen hohen Scherkräfte ebenso durch Einwirkung von Ultraschall, Hindurchpressen der zu dispergieren Mischung unter hohem Druck durch einen engen Spalt oder durch Düsen kleinen Durchmessers sowie mit Hilfe von Kolloidmühlen erzielt werden.

Das Dispergieren der Monomere sowie der weiteren Bestandteile der Reaktionsmischung findet im allgemeinen bei Temperaturen im Bereich von 0 bis 100°C, vorzugsweise im Bereich von 20 bis 60°C statt, ohne hierauf beschränkt zu sein.

Die Dispergationsdauer kann in einem weiten Bereich in Abhängigkeit vom gewünschten Durchmesser der

Monomertröpfchen, von der einzustellenden Größenverteilung und von den Mengenverhältnissen der Mischungsbestandteile liegen. Im allgemeinen kann die Dispersion innerhalb weniger Stunden hergestellt werden.

Das Dispergieren erfolgt im allgemeinen vor Beginn der Polymerisation. Allerdings kann, insbesondere zu Beginn der Polymerisation eine hohe Scherkraft auf die Dispersion einwirken, um eine mögliche Bildung von größeren Aggregaten zu vermeiden. Andererseits sollte die Polymerisation bald nach Bildung der Dispersion erfolgen. Überraschend wurde jedoch festgestellt, daß die durch die Aluminiumverbindung stabilisierte Dispersion über einen relativ großen Zeitraum haltbar ist. Diese Eigenschaft erleichtert die Verwendung üblicher Polymerisationsanlagen, da im Gegensatz zu vielen herkömmlichen Verfahren, zu Beginn der Polymerisation keine Einwirkung von Scherkräften erforderlich ist.

Die Polymerisation kann bei Normaldruck, Unter- od. Überdruck durchgeführt werden. Auch die Polymerisationstemperatur ist unkritisch. Je nach verwendetem Initiatorsystem liegt sie im allgemeinen jedoch im Bereich von  $0^{\circ}$  -  $200^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $40^{\circ}$  -  $130^{\circ}\text{C}$  und besonders bevorzugt  $60^{\circ}$  -  $120^{\circ}\text{C}$ , ohne daß hierdurch eine Beschränkung erfolgen soll.

Nach Beendigung der Polymerisation kann die Aluminiumverbindung beispielsweise durch Zugabe von Schwefel- oder Salzsäure in eine wasserlösliche Form überführt werden. Das Perlpolymerisat kann durch Filtration unter Druck vom Wasser abgetrennt werden, ohne daß Probleme auftreten. Werden bekannte organische Verbindungen anstatt der Aluminiumverbindung zur

Stabilisierung der Dispersion eingesetzt, ist eine derartige Filtration aufgrund der rheologischen Eigenschaften der Mischung nicht möglich.

Die gemäß dem zuvor beschriebenen Verfahren erhaltenen  
5 Perlpolymerisate werden in Formmassen eingearbeitet, um  
zum Gegenstand der vorliegenden Erfindung zu gelangen.  
Als Matrixpolymere eignen sich alle für diesen Zweck  
bekannten thermoplastisch verarbeitbaren Polymere.  
Hierzu gehören unter anderem Polyalkyl(meth)acrylate,  
10 wie beispielsweise Polymethylmethacrylat (PMMA),  
Polyacrylnitrile, Polystyrole, Polyether, Polyester,  
Polycarbonate, Polyvinylchloride. Hierbei sind  
Polyalkyl(meth)acrylate bevorzugt. Diese Polymere  
können einzeln sowie als Mischung eingesetzt werden.  
15 Des weiteren können diese Polymere auch in Form von  
Copolymeren vorliegen.

Besonders bevorzugte Formmassen weisen mindestens  
60 Gew.-%, bezogen auf das gesamte Gewicht der  
Formmasse, Matrixpolymere auf, die durch Polymerisation  
20 einer Monomerenmischung erhältlich sind, die mindestens  
60 Gew.-%, bevorzugt mindestens 80 Gew.-%,  
(Meth)acrylate aufweist. In besonderen Ausgestaltungen  
beträgt der Anteil dieser bevorzugten Matrixpolymere  
mindestens 80 Gew.-%. Hinsichtlich der (Meth)acrylate  
25 kann auf die zuvor dargelegte Definition verwiesen  
werden. Hierbei ist die Verwendung von  
Methylmethacrylat besonders bevorzugt.

Derartig besonders bevorzugte Formmassen sind unter dem  
Handelsnamen PLEXIGLAS® von der Fa. Röhm GmbH  
30 kommerziell erhältlich.

Das Gewichtsmittel des Molekulargewichts  $\overline{M}_w$  der  
erfindungsgemäß als Matrixpolymere zu verwendenden

Homo- und/oder Copolymere kann in weiten Bereichen schwanken, wobei das Molekulargewicht üblicherweise auf den Anwendungszweck und die Verarbeitungsweise der Formmasse abgestimmt wird. Im allgemeinen liegt es aber  
 5 im Bereich zwischen 20 000 und 1 000 000 g/mol, vorzugsweise 50 000 bis 500 000 g/mol und besonders bevorzugt 80 000 bis 300 000 g/mol, ohne daß hierdurch eine Einschränkung erfolgen soll.

Wesentlich für die diffuse Ausstattung der Formmassen  
 10 ist, daß die Perlpolymerisate einen vom Matrixpolymer unterschiedlichen Brechungsindex  $n_D$  bei 20°C aufweisen. Hierbei wird die Differenz zwischen dem Brechungsindex der Matrixpolymere und dem Brechungsindex der  
 Perlpolymerisate bei der Na-D-Linie (589 nm) und bei  
 15 20°C gemessen. Bevorzugte Ausgestaltungen der erfindungsgemäßen Formmassen weisen eine Differenz des Brechungsindex von mindestens 0,1, vorzugsweise mindestens 0,2 und besonders bevorzugt mindestens 0,5 auf. Je größer die Differenz, desto geringer kann der  
 20 Anteil der Perlpolymerisate in der Formmasse gewählt werden, um gleiche Streueigenschaften zu erhalten.

Essentiell ist die Differenz beider Brechungsindizes. Dementsprechend kann der Brechungsindex der Matrixpolymere größer oder kleiner als der  
 25 Brechungsindex der Perlpolymerisate sein. Zur Einstellung des Brechungsindex können bekannte Methoden eingesetzt werden. Beispielsweise können bei der Herstellung der Matrixpolymere oder der Perlpolymerisate Monomere copolymerisiert werden, die  
 30 Schwefelatome enthalten.

Der Anteil der Perlpolymerisate in der Formmasse ist abhängig vom zu erzielenden Streueffekt. Im allgemeinen enthalten die Formmassen 0,1 Gew.-% bis 50 Gew.-%,

vorzugsweise 1 Gew.-% bis 20 Gew.-% und besonders bevorzugt 2 Gew.-% bis 15 Gew.-% Perlpolymerisate, bezogen auf das Gesamtgewicht der Formmasse, ohne daß hierdurch eine Beschränkung erfolgen soll.

- 5 Die Formmassen können übliche Zusatzstoffe aller Art enthalten. Hierzu gehören unter anderem Antistatika, Antioxidantien, Entformungsmittel, Flammenschutzmittel, Schmiermittel, Farbstoffe, Fließverbesserungsmittel, Füllstoffe, Lichtstabilisatoren und organische
- 10 Phosphorverbindungen, wie Phosphite oder Phosphonate, Pigmente, Verwitterungsschutzmittel und Weichmacher.

Aus den zuvor beschriebenen Formmassen können durch bekannte Verfahren, wie beispielsweise Spritzguß oder Extrusion Formkörper erhalten werden, die in der Lage

15 sind diffuses Licht abzustrahlen.

- Besondere Ausführungsformen des lichtstreuenden Formkörpers zeigen eine Transmission (T) gemäß DIN 5036 = 72%, vorzugsweise = 76%, einen Gelbwert (G) gemäß DIN 6167 = 15%, vorzugsweise = 10% und einen
- 20 Energiehalbwertswinkel ( $\beta$ ) = 10°, vorzugsweise = 15°, ohne daß hierdurch eine Beschränkung erfolgen soll.

Der Energiehalbwertswinkel ( $\beta$ ) wird mit der in Figur 1 abgebildeten Apparatur bestimmt:

- 25 Das Meßgerät besteht aus einer Grundplatte (1) auf die gemäß Figur 1 folgende Komponenten montiert sind:

- He-Ne-Laser mit Strahl-Absperrblende (2)
- Probenhalter (3) im Focus der

30 - Kondensorlinse (4) mit Durchmesser 55 mm;  $f = 39$  mm

- Irisblende (5) mit max. Durchmesser 60 mm und Höhenanschlag (5a),

- Kondensorlinse (6) mit Durchmesser 55 mm;  $f = 39$  mm  
mit Focus auf der
- Fotodiode (7)

5 Ohne Probe und bei geöffneter Strahl-Absperrblende des  
He-Ne-Laser (2) fällt der ursprünglich im Durchmesser  
ca. 1 mm messende Laserstrahl in der angegebenen  
Reihenfolge mittig durch jede Komponente und zentral  
auf die Fotodiode (7). Bei einer eingebauten,  
10 transparenten und lichtstreuenden Probe wird der  
transmittierte Anteil des Laserstrahls, abhängig vom  
Streuvermögen der Probe divergent aufgeweitet. Die  
Kondensorlinse (4) formt daraus einen aufgeweiteten  
Parallelstrahl von maximal 55 mm Durchmesser, der  
15 ungehindert durch die voll geöffnete Irisblende (5) auf  
die zweite Kondensorlinse (6) und von dieser auf die  
Sensorfläche der Photodiode (7) fokussiert wird. Ein  
Meßgerät zeigt den Diodenstrom an, der dem Lichtstrom  
proportional ist. Schließt man die Irisblende (5)  
20 langsam, dann eliminiert diese von außen her zunehmend  
Lichtstrahlen und die angezeigte Stromstärke nimmt ab.  
Der Blendendurchmesser, bei dem die Hälfte der  
ursprünglichen Stromstärke angezeigt wird,  
charakterisiert den Energiehalbwertswinkel ( $\beta$ ).

25

Die Bestimmungsgleichung hierzu lautet:

$$\beta = \arctan \frac{D}{2f}$$

mit  $D$  = Blendendurchmesser bei halber  
Stromstärke in mm,

30  $f$  = Brennweite der Kondensorlinse = 39 mm.

Die Dicke des Formkörpers ist von der Anwendung  
abhängig. So können die erfindungsgemäßen Formmassen zu  
Folien extrudiert werden. Des weiteren können die

Formmassen zu Platten mit den üblichen Maßen geformt werden. Besondere Ausgestaltungen der erfindungsgemäßen Formkörper weisen eine Dicke im Bereich von 0,05 mm bis 50 mm, vorzugsweise 0,1 bis 25 mm auf.

- 5 Des weiteren können die erfindungsgemäßen Formmassen als Coextrusionsschicht auf andere Folien aufgebracht werden. Verfahren hierfür sind an sich bekannt.

- 10 Nachfolgend wird die Erfindung durch Beispiele und Vergleichsbeispiele eingehender erläutert, ohne daß die Erfindung auf diese Beispiele beschränkt werden soll.

#### Beispiel 1

- 15 Zur Herstellung des Suspensionspolymerisats wurde ein Aluminiumhydroxid-Pickering-Stabilisator verwendet, der durch Fällung aus Aluminiumsulfat und Sodalösung unmittelbar vor Beginn der eigentlichen Polymerisation hergestellt wurde. Hierzu wurden zunächst 16 g  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ , 0,032 g Komplexbildner (Trilon A) und 0,16 g
- 20 Emulgator (Emulgator K 30 erhältlich von der Fa. Bayer AG; Natriumsalz eines  $\text{C}_{15}$ -Paraffinsulfonats) in 0,8 l destilliertem Wasser gelöst. Anschließend wurde bei einer Temperatur von ca. 40°C eine 1N Natriumcarbonat-Lösung zu dem in Wasser gelöstem Aluminiumsulfat unter
- 25 Rühren zugegeben, wobei der pH-Wert anschließend im Bereich von 5 bis 5,5 lag. Durch diese Vorgehensweise wurde eine kolloidale Verteilung des Stabilisators im Wasser erzielt.

- 30 Nach der Fällung des Stabilisators wurde die wäßrige Phase in ein Becherglas überführt. Hierzu wurden 110g Methylmethacrylat, 80g Benzylmethacrylat und 10g Allylmethacrylat sowie 4g Dilaurylperoxyd und 0,4g

tert.-Butylper-2-ethylhexanoat gegeben. Diese Mischung wurde mittels eines Dispergators (Ultra-Turrax S50N-G45MF, Fa. Janke und Kunkel, Staufen) 15 Minuten bei 7000 U/min dispergiert.

5

Im Anschluß an die Scherung wurde das Reaktionsgemisch in den Reaktor, welcher auf die entsprechende Reaktionstemperatur von 80 °C vorgeheizt wurde, eingefüllt und bei ca. 80°C (Polymerisationstemperatur) 10 45 Minuten (Polymerisationsdauer) unter Rühren (600 U/min) polymerisiert. Es folgte eine Nachreaktionsphase von 1 Stunde bei ca. 85°C Innentemperatur. Nach Abkühlen auf 45°C wurde der Stabilisator durch Zusatz von 50%iger Schwefelsäure in wasserlösliches 15 Aluminiumsulfat überführt. Zur Aufarbeitung der Perlen wurde die erhaltene Suspension über ein handelsübliches Filtertuch filtriert und im Wärmeschrank 24 Stunden bei 50°C getrocknet.

20 Die Größenverteilung wurde durch Laserextinktionsverfahren untersucht. Die Teilchen wiesen eine mittlere Größe  $V_{50}$  von 7,1 µm und eine Standardabweichung von 2,63 µm auf. Die Perlen hatten eine sphärische Form, wobei keine Fasern festgestellt 25 werden konnten. Koagulation trat nicht auf.

Zur weiteren Untersuchung wurde eine PMMA-Standardformmasse (PLEXIGLAS® 7 N erhältlich von Röhm GmbH) mit 6 Gew.-% der in Beispiel 1 hergestellten 30 Lichtstreupearlen modifiziert. Aus dieser Formmasse wurde durch Spritzguß ein Prüfkörper mit den Maßen 60mm x 45mm x 3mm hergestellt, an dem die Transmission (T) gemäß DIN 5036, der Gelbwert (G) gemäß DIN 6167 und der Energiehalbwertswinkel ( $\beta$ ) gemäß der zuvor



beschriebenen Weise bestimmt wurden. Die so erhaltenen Daten sind in Tabelle 1 dargestellt.

#### Vergleichsbeispiel 1

5

Das Beispiel 1 wurde im wesentlichen wiederholt, außer daß 24 g tri-Calciumphosphat anstatt des frisch gefällten Aluminiumhydroxids eingesetzt wurden.

- 10 Die Größenverteilung des so erhaltenen Perlpolymerisats wurde durch Laserextinktionsverfahren untersucht. Die Teilchen wiesen eine mittlere Größe  $V_{50}$  von 56,9  $\mu\text{m}$  und eine Standardabweichung von 20,8  $\mu\text{m}$  auf.

#### 15 Beispiel 2

- Das Beispiel 1 wurde im wesentlichen wiederholt, wobei jedoch jeweils die 80fachen Mengen der Bestandteile eingesetzt wurden. Hierdurch mußten einige technisch  
20 bedingte Änderungen vorgenommen werden. Der gefällte Pikingstabilisator wurde mit Monomeren, Initiator und Zusatzstoffen im Reaktor vorgelegt und anschließend bei einer Temperatur von 40 °C mit Hilfe eines  
Durchflußdispergators (Dispax-Reaktor, Fa. Janke und  
25 Kunkel) dispergiert. Hierzu wurde die Mischung 30 Minuten zyklisch durch den Dispergator geführt, wobei die Dispersion innerhalb des Reaktors mit einem konventionellen Rührer bei 150 U/min gerührt wurde.

- 30 Nach 30 Minuten wurde die Dispersion auf 80°C erwärmt. Die Polymerisation und Aufarbeitung erfolgte gemäß Beispiel 1.

- Die Größenverteilung des so erhaltenen Perlpolymerisats  
35 wurde durch Laserextinktionsverfahren untersucht. Die

Teilchen wiesen eine mittlere Größe  $V_{50}$  von 16,3  $\mu\text{m}$  und eine Standardabweichung von 4,6  $\mu\text{m}$  auf.

Zur weiteren Untersuchung wurde eine PMMA-

- 5 Standardformmasse (PLEXIGLAS® 7 N erhältlich von Röhm GmbH) mit 6 Gew.-% der in Beispiel 2 hergestellten Lichtstreuperlen modifiziert. Aus dieser Formmasse wurde durch Spritzguß ein Prüfkörper mit den Maßen 60mm x 45mm x 3mm hergestellt, an dem die in Beispiel 1  
10 beschriebenen Größen bestimmt wurden. Die so erhaltenen Daten sind in Tabelle 1 dargestellt.

#### Vergleichsbeispiel 2

- 15 Das Beispiel 1 wurde im wesentlichen wiederholt, außer daß 3,2 g Mowiol 4088, ein von der Fa. Clariant GmbH erhältlicher organischer Stabilisator, anstatt des frisch gefällten Aluminiumhydroxids eingesetzt wurden.
- 20 Die Herstellung der Dispersion und die Polymerisation erfolgte gemäß Beispiel 1. Aufgrund der rheologischen Eigenschaften der Mischung konnte die Zusammensetzung nicht über eine Druckfiltration aufgearbeitet werden.
- 25 Die Größenverteilung des so erhaltenen Perlpolymerisats wurde durch Laserextinktionsverfahren untersucht. Die Teilchen wiesen eine mittlere Größe  $V_{50}$  von 4,56  $\mu\text{m}$  und eine Standardabweichung von 1,41  $\mu\text{m}$  auf.
- 30 Zur weiteren Untersuchung wurde eine PMMA-Standardformmasse (PLEXIGLAS® 7 N erhältlich von Röhm GmbH) mit 6 Gew.-% der in Vergleichsbeispiel 2 hergestellten Lichtstreuperlen modifiziert. Aus dieser Formmasse wurde durch Spritzguß ein Prüfkörper mit den  
35 Maßen 60mm x 45mm x 3mm hergestellt, an dem die in

Beispiel 1 beschriebenen Größen bestimmt wurden. Die so erhaltenen Daten sind in Tabelle 1 dargestellt.

### Vergleichsbeispiel 3

5

Polymere mit einer Zusammensetzung gemäß Beispiel 1 wurden durch ein in DE-A-43 27 464 beschriebenes Fällungsverfahren in Cyclohexan hergestellt.

10

Die Teilchen wiesen eine mittlere Größe von 6  $\mu\text{m}$  und eine Standardabweichung von 1,41  $\mu\text{m}$  auf. Diese Werte wurden über rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen bestimmt, wobei einzelne Teilchen gemessen und deren Zahl bestimmt wurden.

15

Zur weiteren Untersuchung wurde eine PMMA-Standardformmasse (PLEXIGLAS® 7 N erhältlich von Röhm GmbH) mit 6 Gew.-% der in Vergleichsbeispiel 3 hergestellten Lichtstreuuperlen modifiziert. Aus dieser Formmasse wurde durch Spritzguß ein Prüfkörper mit den Maßen 60mm x 45mm x 3mm hergestellt, an dem die in Beispiel 1 beschriebenen Größen bestimmt wurden. Die so erhaltenen Daten sind in Tabelle 1 dargestellt.

25 Tabelle 1

	T [%]	G [%]	$\beta$ [°]
Beispiel 1	76,3	9,4	22,5
Beispiel 2	91,1	2,9	18,5
Vergleichsbsp. 2	71,9	28,2	-
Vergleichsbsp. 3	77	9,5	23,1

Die Prüfergebnisse in Tabelle 1 zeigen, daß die erfindungsgemäßen Formkörper (Beispiel 1 und 2), das Licht ohne großen Energieverlust sehr gut streuen. Des

weiteren zeigen diese Formkörper Vorteile gegenüber dem Formkörper, in den die in Vergleichsbeispiel 2 erhaltenen Streuperlen eingearbeitet wurden. Zwar wird das Licht durch Einsatz des Streumittels stark  
5 gestreut, allerdings steigt dabei der Gelbwert G stark an und die Transmission T ist deutlich geringer als bei den Formmassen, die mit Streuperlen gemäß Beispiel 1 oder 2 modifiziert wurden. Eine starke Rückwärtsstreuung ist einem hohen Energieverlust  
10 gleichzusetzen. Dies ist auf die Zersetzung des verwendeten organischen Verteilers zurückzuführen.

Die optischen Eigenschaften sind bei Beispiel 1 und Vergleichsbeispiel 3 fast identisch. Nachteilig bei Vergleichsbeispiel 3 ist das Herstellungsverfahren der  
15 hier eingesetzten Streuperlen. Diese werden über eine Fällungspolymerisation in Cyclohexan hergestellt. Aufgrund der Morphologie der so hergestellten Perlen ist das Trocknungsverfahren aufwendig, wobei das Trocknungsverfahren wegen des organischen  
20 Lösungsmittels sicherheitstechnische Probleme bereitet.

## Patentansprüche

1. Diffus ausgestattete Formmasse aufweisend  
Matrixpolymere und Perlpolymerisate mit einer  
5 mittleren Teilchengröße im Bereich von 5 bis 40  $\mu\text{m}$ ,  
die einen vom Matrixpolymer unterschiedlichen  
Brechungsindex  $n_D$  bei 20°C aufweisen, wobei die  
Perlpolymerisate nach einem Verfahren erhältlich  
sind, bei dem man eine polymerisierbare  
10 Zusammensetzung, die mindestens 50 Gew.-%  
(Meth)acrylate aufweist, in wäßriger Phase  
dispergiert und polymerisiert, dadurch  
gekennzeichnet, daß man die mit einer  
Aluminiumverbindung stabilisierte Dispersion bei  
15 einer Schergeschwindigkeit  $\geq 10^3 \text{ s}^{-1}$  herstellt.
2. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,  
daß man  $\text{Al}(\text{OH})_3$  zur Stabilisierung einsetzt.
3. Formmasse gemäß Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet,  
daß man das  $\text{Al}(\text{OH})_3$  durch Fällung herstellt.
- 20 4. Formmasse gemäß einem oder mehreren der  
vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Konzentration der Aluminiumverbindung,  
bezogen auf das Gewicht der polymerisierbaren  
Zusammensetzung, im Bereich von 0,5 bis 200 Gew.-%  
25 liegt.
5. Formmasse gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Konzentration der Aluminiumverbindung,  
bezogen auf das Gewicht der polymerisierbaren  
Zusammensetzung, im Bereich von 3 bis 100 Gew.-%  
30 liegt.

6. Formmasse gemäß Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Konzentration der Aluminiumverbindung,  
bezogen auf das Gewicht der polymerisierbaren  
Zusammensetzung, im Bereich von 4 bis 20 Gew.-%  
5 liegt.
7. Formmasse gemäß einem oder mehreren der  
vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Teilchengröße im Bereich von 5 bis 20  $\mu\text{m}$   
liegt.
- 10 8. Formmasse gemäß einem oder mehreren der  
vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
daß die polymerisierbare Zusammensetzung mindestens  
60 Gew.-% (Meth)acrylate aufweist.
- 15 9. Formmasse gemäß einem oder mehreren der  
vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
daß man zusätzlich einen Emulgator einsetzt.
- 20 10. Formmasse gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Konzentration des Emulgators, bezogen auf  
das Gewicht der Aluminiumverbindung, im Bereich von  
0 bis 5 Gew.-% liegt.
- 25 11. Formmasse gemäß Anspruch 10, dadurch  
gekennzeichnet, daß die Konzentration des  
Emulgators, bezogen auf das Gewicht der  
Aluminiumverbindung, im Bereich von 0,3 bis 3  
Gew.-% liegt.
12. Formmasse gemäß einem oder mehreren der  
vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
daß man die nach der Polymerisation erhaltene  
Dispersion filtriert.
- 30 13. Formmasse gemäß einem oder mehreren der  
vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,

daß das Matrixpolymer Polyalkyl(meth)acrylate, Polyacrylnitrile, Polystyrole, Polyether, Polyester, Polycarbonate und/oder Polyvinylchloride umfaßt.

- 5 14. Formmasse gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Differenz zwischen dem Brechungsindiz der Matrixpolymere und dem Brechungsindex der Perlpolymerisate gemessen bei der Na-D-Linie  
10 (589 nm) und bei 20°C mindestens 0,1 beträgt.
- 15 15. Formmasse gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Formmasse mindestens 2 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Formmasse, Perlpolymerisate aufweist.
16. Diffuser Formkörper erhalten durch thermoplastisches Formen einer Formmasse gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 15.
- 20 17. Diffuser Formkörper gemäß Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Transmission (T) gemäß DIN 5036 = 72% ist.
18. Diffuser Formkörper gemäß Anspruch 16 oder 17, dadurch gekennzeichnet, daß der Gelbwert (G) gemäß DIN 6167 = 15% ist.
- 25 19. Diffuser Formkörper gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 16 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß und der Energiehalbwertswinkel ( $\beta$ ) = 10° ist.
- 30 20. Diffuser Formkörper gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 16 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß der Formkörper eine Dicke im Bereich von 0,5 mm bis 20 mm aufweist.

### Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft diffus ausgestattete Formmasse aufweisend Matrixpolymere und

- Perlpolymerisate mit einer mittleren Teilchengröße im  
5 Bereich von 5 bis 40  $\mu\text{m}$ , die einen vom Matrixpolymer unterschiedlichen Brechungsindex  $n_D$  bei 20°C aufweisen, wobei man die Perlpolymerisate nach einem Verfahren herstellt bei dem man eine polymerisierbare Zusammensetzung, die mindestens 50 Gew.-%  
10 (Meth)acrylate aufweist, in wäßriger Phase dispergiert und polymerisiert. Die mit einer Aluminiumverbindung stabilisierte Dispersion wird bei einer Schergeschwindigkeit  $\geq 10^3 \text{ s}^{-1}$  hergestellt.

- Des weiteren befaßt sich die vorliegende Erfindung mit  
15 diffus ausgestatteten Formkörpern, die durch Formen der erfindungsgemäßen Formmassen erhalten werden können.



Figur 1

